

日本国特許庁 18.10.2004
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2003年10月16日
Date of Application:

出願番号 特願2003-356300
Application Number:

[ST. 10/C]: [JP2003-356300]

出願人 原子燃料工業株式会社
Applicant(s):

REC'D 09 DEC 2004

WIPO

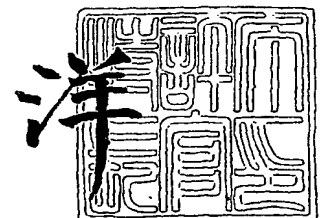
PCT

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年11月25日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願
【整理番号】 G030604
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 G21C 3/58
【発明者】
 【住所又は居所】 茨城県ひたちなか市東石川 3 4 4 3 - 5
 【氏名】 大久保 和俊
【特許出願人】
 【識別番号】 000165697
 【氏名又は名称】 原子燃料工業株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100087594
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 福村 直樹
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 012069
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9807699

【書類名】特許請求の範囲**【請求項 1】**

アンモニア水溶液を貯留した滴下槽と、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を前記アンモニア水溶液中に滴下する複数の滴下ノズルと、前記複数の滴下ノズルを同時に振動させる1基の加振器とを備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

【請求項 2】

滴下ノズルごとに滴下原液の滴下流量を調節可能な流量調節手段が設けられて成ることを特徴とする前記請求項 1 に記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

【書類名】明細書

【発明の名称】重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置

【技術分野】

【0001】

本発明は、重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関し、さらに詳しくは、均一な形状および粒径を有する重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することができる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関する。

【背景技術】

【0002】

高温ガス炉用燃料は、一般的に以下のような工程を経て製造される。まず、酸化ウランの粉末を硝酸に溶かして硝酸ウラニル原液とする。次に、この硝酸ウラニル原液に純水および増粘剤等を添加し、攪拌して滴下原液とする。調製された滴下原液は、所定の温度に冷却され、粘度を調製した後に、細径の滴下ノズルからアンモニア水溶液に滴下される。

【0003】

このアンモニア水溶液に滴下された液滴は、アンモニア水溶液表面に達するまでの間に、アンモニアガスが吹きかけられる。このアンモニアガスによって、液滴表面がゲル化され、これにより、落下する前記液滴がアンモニア水溶液の表面に衝突した時に、ゲル化した液滴の変形が、防止される。なお、ゲル化した液滴を、以下において「ゲル化液滴」と称することがある。アンモニア水溶液中におけるゲル化液滴は、その内部に存在する硝酸ウラニルがアンモニアと反応することにより、重ウラン酸アンモニウム粒子（以下において、「ADU粒子」と略することがある。）となる。

【0004】

この重ウラン酸アンモニウム粒子は、洗浄および乾燥された後、大気中で焙焼され、三酸化ウラン粒子となる。さらに、三酸化ウラン粒子は、還元および焼結されることにより、高密度の二酸化ウラン粒子となる。この二酸化ウラン粒子をふるい分け、すなわち分級して、所定の粒子径を有する燃料核微粒子を得る。

【0005】

この燃料核微粒子を流動床に装荷し、被覆層を形成するためのガスを熱分解して、燃料核微粒子表面に複数層から成る被覆層を形成する。被覆層における第一層は、約1400℃でアセチレンを熱分解することにより生成する低密度熱分解炭素で、形成される。また、被覆層における第二層、及び第四層は、約1400℃でプロピレンを熱分解することにより生成する高密度熱分解炭素で、形成される。さらに、被覆層における第三層は、約1600℃でメチルトリクロロシランを熱分解することにより生成するSiCで、形成される。

【0006】

被覆層が形成された後、高温ガス炉用燃料は、一般的な燃料コンパクトとして成型される。この燃料コンパクトは、高温ガス炉用燃料を黒鉛粉末、粘結剤等からなる黒鉛マトリックス材とともに、中空円筒形等にプレス成型またはモールド成型したのち、焼成して得られる（非特許文献1参照）。

【0007】

【非特許文献1】長谷川正義、三島良績 監修「原子炉材料ハンドブック」昭和52年10月31日発行 221-247頁、日刊工業新聞社

【0008】

従来の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置（以下、ADU粒子製造装置と称することがある。）は、一本の滴下ノズルを備えた構成を有していたので、ADU粒子の生産量は最大で200個/秒であった。さらに生産性を向上させるには、滴下ノズルの本数を増加させる必要がある。その場合、複数の各滴下ノズルから送出される滴下原液の送出量を均一にすることが必要であるが、そのような装置は未だ開発されていない。

【0009】

そこで、滴下槽内のアンモニア水溶液に滴下原液を滴下する滴下ノズルを複数本設け、

かつ、振動ヘッドを設けた。つまり振動ヘッドで滴下ノズルを振動させることにより、滴下ノズルから滴下原液をアンモニア水溶液に滴下させるように、ADU粒子製造装置が構成される。振動ヘッドの振動数及び滴下ノズルから送出される滴下原液の量は、燃料核の外径規格値により決定される。

【発明の開示】**【発明が解決しようとする課題】****【0010】**

しかし、本発明者らの検討によると、滴下ノズルを複数本にすると共に各滴下ノズルに振動ヘッドを取り付けると、他の振動ヘッドによる振動の影響を受けてしまい、滴下ノズルから滴下される滴下粒子の容量がばらつき、その結果ADU粒子の粒径もばらつくという問題点を見出し、また、複数の滴下ノズルに共通な1基の流量調節装置を取り付けると、複数の滴下ノズルが同一構造及び同一寸法であるにもかかわらず、各滴下ノズルから滴下される液滴の送出量が不均一に成るという問題点を見出した。本発明は、このような問題点を解決することを目的とする。

【0011】

すなわち、本発明は、滴下ノズルから滴下される滴下原液の送出量を均一にすること、これによって均一な形状及び寸法を有する重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することのできる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を提供することをその課題とする。

【課題を解決するための手段】**【0012】**

前記課題を解決するための手段として、

請求項1は、アンモニア水溶液を貯留した滴下槽と、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を前記アンモニア水溶液中に滴下する複数の滴下ノズルと、前記複数の滴下ノズルを同時に振動させる1基の加振器とを備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置であり、

請求項2は、滴下ノズルごとに滴下原液の滴下流量を調節可能な流量調節手段が設けられて成ることを特徴とする前記請求項1に記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置である。

【発明の効果】**【0013】**

本発明の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置によると、一つの加振器で複数の滴下ノズルを振動させるので、滴下ノズル同士の共振をなくし、他の滴下ノズルの振動の影響を受けることがなくなるので、容易に、滴下粒子の粒径を制御することができる。本発明の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置によると、滴下ノズル毎に、流量調節手段を備えることにより、滴下原液が流れるときの圧力損失の相違を減少させることができるので、その結果、粒径が均一な重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することができる。

【発明を実施するための最良の形態】**【0014】**

図1に、本発明の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の一例を示す。図1に示されるように、重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置1は、振動ノズル装置2、及び滴下槽3を備える。

【0015】

振動ノズル装置2は、複数の、例えば図1に示されるように4本の滴下ノズル4と1基の加振器5（図2参照）とを備える。さらに具体的に述べると、図2に示されるように、振動ノズル装置2は、それぞれ垂直に、かつ所定間隔を設けて互いに平行に配列されたところの、互いに同形状の円筒管状をなす4本の滴下ノズル4と、この滴下ノズル4を保持する保持部材6と、この保持部材6を上方から支持する支持部材7と、この支持部材7を介して滴下ノズル4に垂直方向の振動を与える加振器5と、前記滴下ノズル4それぞれに結合された滴下原液供給管8とを備える。

【0016】

前記滴下ノズル 4 の材質としては、耐腐食性を有する材質であれば、特に、制限はなく、例えば、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、チタン合金等を挙げることができる。

【0017】

前記滴下ノズル 4 の開口部における水平断面の形状としては、内径が、500～1000 μm の円形であるのが好ましい。

【0018】

前記 4 本の滴下ノズル 4 は、図 1 に示されるように横一列に配列してもよいが、平面上に仮想的に形成される正方形の各頂点に各滴下ノズル 4 が立設する配置関係を有していても良い。

【0019】

滴下ノズル 4 に結合される滴下原液供給管 8 は、滴下原液を貯留するタンク（図示せず。）に結合され、図示されない適宜の送液手段、例えば、ポンプによりタンク内の滴下原液が滴下ノズル 4 に送液されるようになっている。前記滴下原液は、硝酸ウラニル、純水、及び増粘剤等を含有する。前記増粘剤としては、ポリビニルアルコール、アルカリ条件下で凝固する樹脂、ポリエチレングリコール及びメトロース等を挙げることができる。この滴下原液は、所定の温度に冷却、維持されて粘度の調整が行われた後に、滴下ノズル 4 の送出される。

【0020】

前記加振器 5 は、支持部材 7 を介して各滴下ノズル 4 それぞれに垂直方向に振動を与えることができるように構成され、例えば電磁式振動発生器、機械式振動発生器、及び超音波振動発生器等を採用して形成することができる。この加振器 5 が滴下ノズル 4 に与える振動数としては 40～200 Hz が好ましい。振動数が前記範囲外であると、所定外径を有する良好な滴下粒子を滴下ノズル 4 の下端開口部から滴下させることができないことが、振動数が前記範囲内にあるほうが容易に所定外径の良好な滴下粒子を滴下させることができる。

【0021】

図 1 に示されるように、滴下槽 3 は、その内部に貯留されたアンモニア水溶液に含まれるアンモニアと前記滴下ノズル 4 から滴下される滴下原液の滴下粒子中に含まれる硝酸ウラニルとを反応させて重ウラン酸アンモニウムを形成する反応を行う槽である。滴下槽 3 は、半球状に湾曲した底部と円筒形をした胴部とからなり、滴下槽 3 の内部の所定高さまでアンモニア水溶液を貯留する。滴下槽 3 は、その内部に貯留されたアンモニア水溶液の液面よりもさらに上方に滴下槽 3 の胴部が延長されている。この滴下槽 3 の胴部には、貯留されるアンモニア水溶液 10 の液面よりも上方に位置するように、アンモニアガス供給管 9 が配置され、このアンモニアガス供給管 9 から供給されるアンモニアガスによって、滴下槽 3 の内部であってアンモニア水溶液 10 の液面より上方の雰囲気、アンモニアガスとなる。

【0022】

この滴下槽 3 の材質としては、耐腐食性、特に、耐アルカリ性、耐熱性、耐圧性を有する材質であれば、特に制限がなく、例えば、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウムまたはジルコニウム合金等を挙げることができる。

【0023】

なお、前記滴下槽 3 の大きさとしては、特に制限はなく、所望に応じて決めることができる。この滴下槽 3 の形状についても、図 1 に示される形状に限定されず、種々の形状を採用することができる。

【0024】

前記アンモニアガス供給管 9 は、前記滴下ノズル 4 から滴下された滴下粒子の表面をゲル化するため、アンモニアガスを前記滴下槽 3 内のアンモニア水溶液の液面より上方の空間に供給するノズルである。

【0025】

したがって、前記アンモニアガス供給管9の先端開口部は、滴下槽3の内部に向けて開口し、その他端は、例えば、アンモニアガスを充填したガスボンベ等のガス供給手段（図示せず。）に接続される。

【0026】

なお、前記アンモニアガス供給管9の取り付け位置は、滴下槽3内におけるアンモニア水溶液の液面上方の空間をアンモニアガス雰囲気にすることができる限り、特に制限はない。

【0027】

以上構成の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置により、次のようにして、重ウラン酸アンモニウム粒子が製造される。

【0028】

滴下槽3内に所定量のアンモニア水溶液を装入する。4本の滴下ノズル4から滴下原液を前記アンモニア水溶液に滴下する。このとき、図2に示すように、加振器5により4本の滴下ノズル4に同時に同一振動数の振動が加えられる。その結果、同一に振動する4本の滴下ノズル4から、滴下原液の流量が等しければ、実質的に同一の粒径を有する滴下粒子が落下する。

【0029】

滴下ノズル4から滴下された滴下粒子は、滴下ノズル4からアンモニア水溶液迄の落下行程中、一对のアンモニアガス供給管9、9から噴出するアンモニアガスが吹き付けられる。吹き付けられたアンモニアガスにより硝酸ウラニルから成る滴下粒子の表面が一部ゲル化する。アンモニア水溶液に投下されたゲル化した滴下粒子は、表面がゲル化した滴下粒子内に存在する硝酸ウラニルとアンモニアとがさらに反応を継続して重ウラン酸アンモニウムを形成する。

【0030】

なお、図1には示されていないが、滴下槽3の底部に、アンモニアガス供給管を取り付け、切り替え弁の切り替え操作により滴下槽3内のアンモニア水溶液中にアンモニアガスを吹き込むことができるようにしておくと、さらに真球度の高い重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することができる。というのは、滴下槽3内のアンモニア水溶液にアンモニア粒子を製造することができる。というのは、滴下槽3内のアンモニア水溶液にアンモニアガス供給管からアンモニアガスが導入されると、アンモニアガスはアンモニア水溶液中をバブルとなって上昇し、滴下槽3内にアンモニア水溶液の上昇流と下降流とを生じさせる。滴下された滴下粒子が滴下槽3の底部に堆積することなく常に流動状態になっているので、堆積による粒子形状の変形を起こすことがなく、また新鮮なアンモニアガスが導入されるので硝酸ウラニルとアンモニアとの反応が十分に進行するので内部まで重ウラン酸アンモニウムとなった粒子が形成される。

【0031】

所定量の滴下原液の滴下が終了すると、滴下槽3内のアンモニア水を除去し、適宜の手法、たとえば滴下槽3を傾斜反転させることにより、又は滴下槽3内の内容物を掻き出すことにより、又は滴下槽3内の内容物を吸引除去することにより、生成した重ウラン酸アンモニウム粒子を取り出す。

【0032】

以上にこの発明の一実施例について説明したが、この発明は前記例に限定されるものではなく、この発明の範囲内において適宜に設計変更をすることができる。

【0033】

例えば、加振器5による滴下ノズルの振動方向は垂直方向に限らず、水平方向であっても良い。滴下ノズルの本数についても特に制限がなく、重ウラン酸アンモニウム粒子の製造能力を考慮して、滴下槽の大きさに応じて滴下ノズルの本数を決定することができる。滴下ノズルの配置についても適宜に決定することができる。

【0034】

重ウラン酸アンモニウム粒子の製造においては、複数の滴下ノズルに1基の加振器によ

り同一の振動を与えることにより実質的に真球に重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することができることを、上記説明で明らかにしたが、真球に近い重ウラン酸アンモニウム粒子を製造するには滴下ノズルから滴下される滴下粒子の容量を適正に制御することも重要である。

【0035】

そこで、この発明に係る重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置においては、滴下ノズルごとに滴下原液の滴下流量を調節可能な流量調節手段を設けることも重要である。

【0036】

このように流量調節手段を設けることにより、各々の滴下ノズルから滴下される滴下原液の滴下量を制御することができ、さらに、滴下量を一樣にすることができる。その結果、重ウラン酸アンモニウム粒子の粒径のばらつきを抑えることができる。

【0037】

図3に、重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の一例を示す。

【0038】

図3において、1は重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置、2は振動ノズル装置、8は滴下原液供給管、11は流量調節手段、12はセパレータおよび13は配管を示している。前記振動ノズル装置2、滴下原液供給管8については、図1及び図2に示される重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置における振動ノズル装置2及び滴下原液供給管8と同様であるので、その詳細な説明を省略する。

【0039】

前記流量調節手段11は、流量調節弁と流量計とを備える（図示せず。）該流量調節手段11は、滴下原液タンクに貯留された滴下原液を前記滴下ノズル4に供給するときに、滴下原液の流量を調節する手段である。この流量調節手段を用いると、例えば、各滴下ノズルから滴下された滴下原液の高さ方向の位置を目視しながら、前記流量調節弁を操作することにより、流量を調節することができる。

【0040】

前記流量調節手段11は、前記滴下ノズル4の各々に対応するように、一つずつ配置されている。

【0041】

前記流量調節手段11は、滴下原液供給管8を介して滴下ノズル4に接続し、また、配管13を介して、滴下原液タンク（図示せず。）と接続する。また、前記配管13の途中に、公知のセパレータ12を配置してもよい。

【0042】

前記流量調節弁としては、公知の流量調節弁を用いることができ、例えば、玉型弁、バタフライ弁またはサンダース弁等を挙げることができる。

【0043】

前記流量調節弁の一例として、玉型弁を図4に示す。

【0044】

図4で示される玉型弁14は、ハンドル15、弁棒16、ふた17、弁抑え18、弁19および弁箱20を備える。

【0045】

この流量調節器14により、複数の滴下ノズルから滴下される液滴の送出量を一定にすることができるので、好適である。

【0046】

前記流量計としては、公知の流量計を用いることができ、例えば、面積式流量計、容積式流量計、タービンメーターまたはうず式流量計等を挙げることができる。

【0047】

前記配管13は、耐腐食性を有すれば、特に制限はなく、ステンレス鋼製、アルミニウム合金製、ポリエチレン製、ポリプロピレン製、PVC製、PET製等の配管を挙げることができる。

【0048】

本発明における重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を用いて、例えば、以下のようにして重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することができる。

【0049】

前記滴下原液タンク内の滴下原液を、ポンプ等により、送液する。

【0050】

前記滴下原液は、流量調節手段で、所望の流量に調節されて、滴下ノズルに達する。

【0051】

このとき、滴下原液の流量は、好ましくは $15 \sim 30 \text{ cm}^3/\text{min}$ になるように、調節される。

【0052】

前記滴下原液の滴下時の流量が $15 \text{ cm}^3/\text{min}$ よりも少ないと、所望量の重ウラン酸アンモニウム粒子を得るために滴下すべき量の滴下原液を滴下するのに時間がかかってしまい、その結果、生産効率が悪くなることがある。

【0053】

また、前記滴下原液の滴下時の流量が $30 \text{ cm}^3/\text{min}$ よりも多いと、滴下原液が粒子状にならず、連続体になってしまうので、滴下粒子を得ることができず、その結果、球状でなく、棒状の重ウラン酸アンモニウム粒子が生成されることがある。

【0054】

滴下ノズルに達した滴下原液は、加振器 5 により振動している滴下ノズル 4 から滴下槽 3 に落下する。滴下槽 3 に落下して重ウラン酸アンモニウム粒子が形成される作用については、図 1 に示される重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の場合と同じである。

【図面の簡単な説明】

【0055】

【図 1】図 1 は、本発明の一例である重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の部分図である。

【図 2】図 2 は、本発明における重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置が備える振動ノズルの一例を示す図である。

【図 3】図 3 は、本発明における重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の一例を示す系統線図である。

【図 4】図 4 は、本発明における重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置が備える流量調節弁の一例である玉型弁の断面を表す図である。

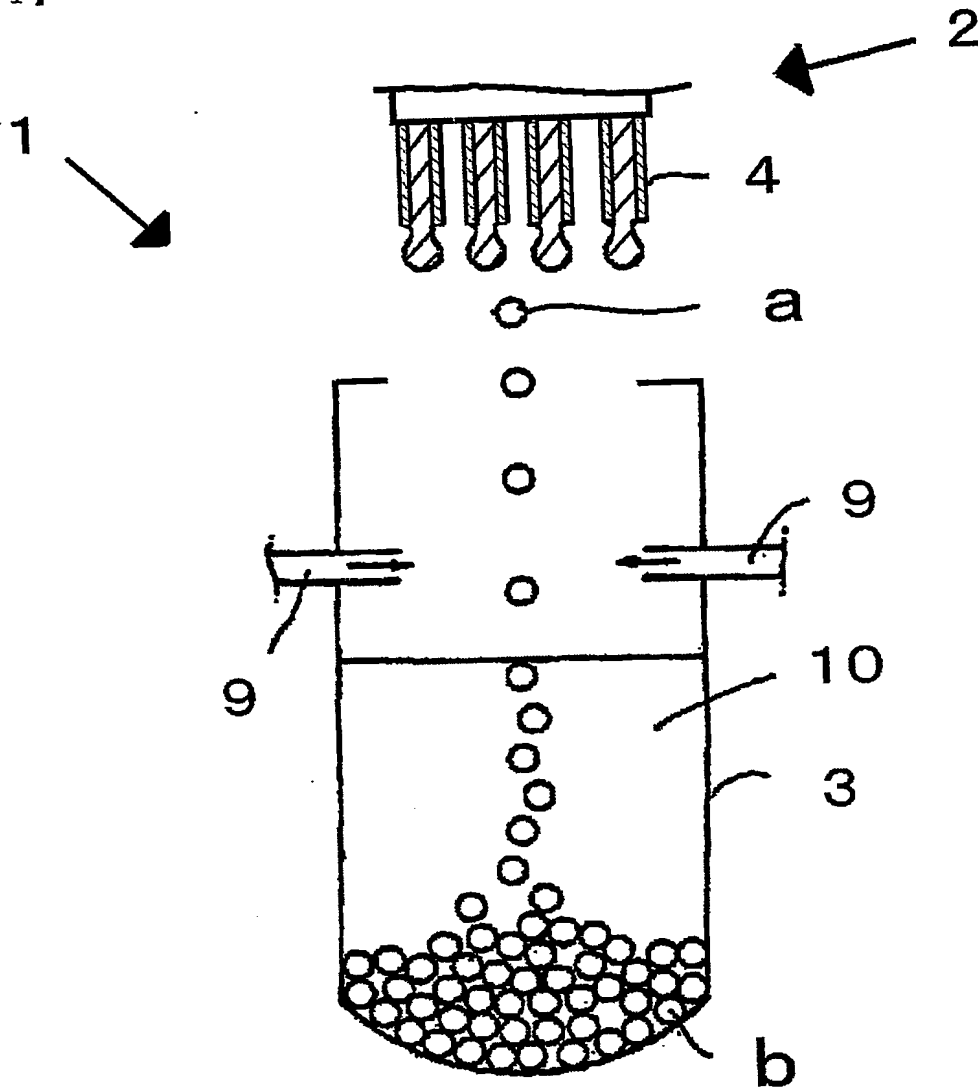
【符号の説明】

【0056】

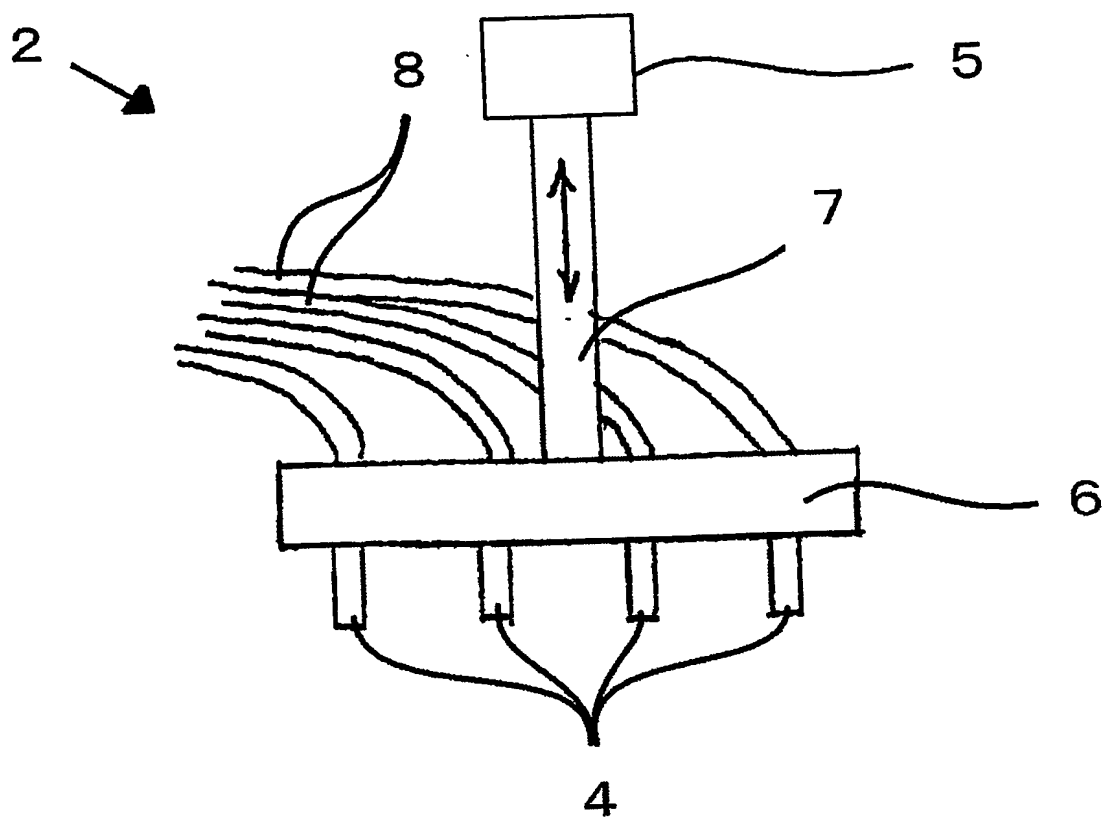
- 1 . . . 重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置
- 2 . . . 振動ノズル装置
- 3 . . . 滴下槽
- 4 . . . 滴下ノズル
- 5 . . . 加振器
- 6 . . . 保持部材
- 7 . . . 支持部材
- 8 . . . 滴下原液供給管
- 9 . . . アンモニアガス供給管
- 10 . . . アンモニア水溶液
- 11 . . . 流量調節手段
- 12 . . . セパレータ
- 13 . . . 配管
- 14 . . . 玉型弁
- 15 . . . ハンドル
- 16 . . . 弁棒

- 1 7 . . . ふた
- 1 8 . . . 弁抑え
- 1 9 . . . 弁
- 2 0 . . . 弁箱
- a . . . 滴下粒子
- b . . . A D U 粒子

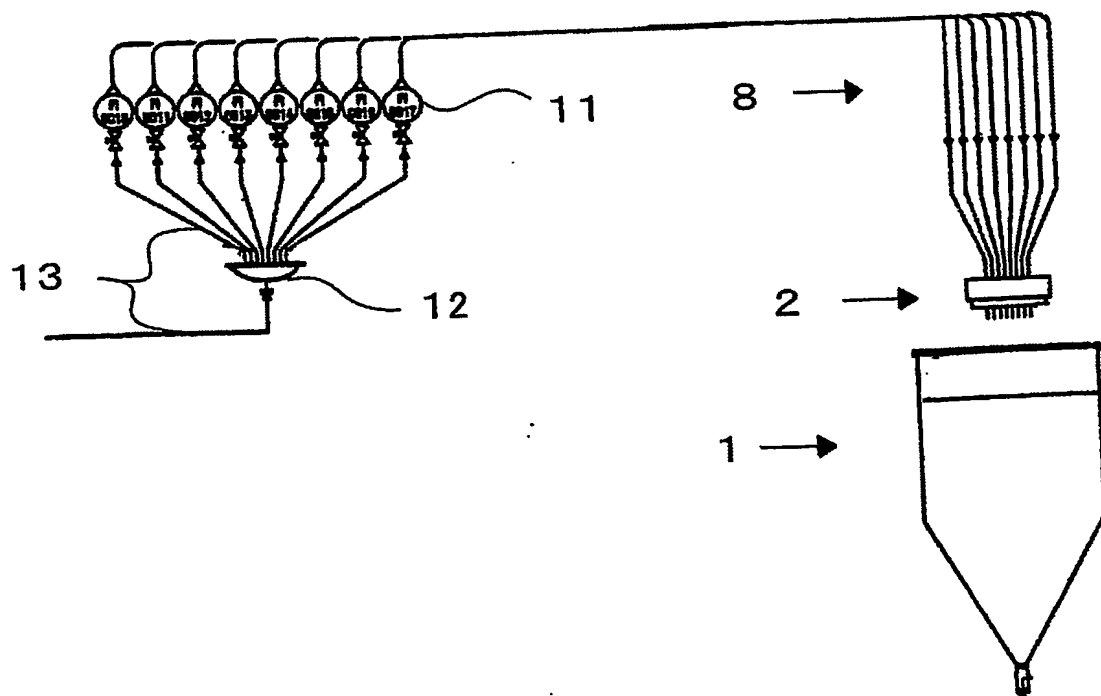
【書類名】 図面
【図 1】



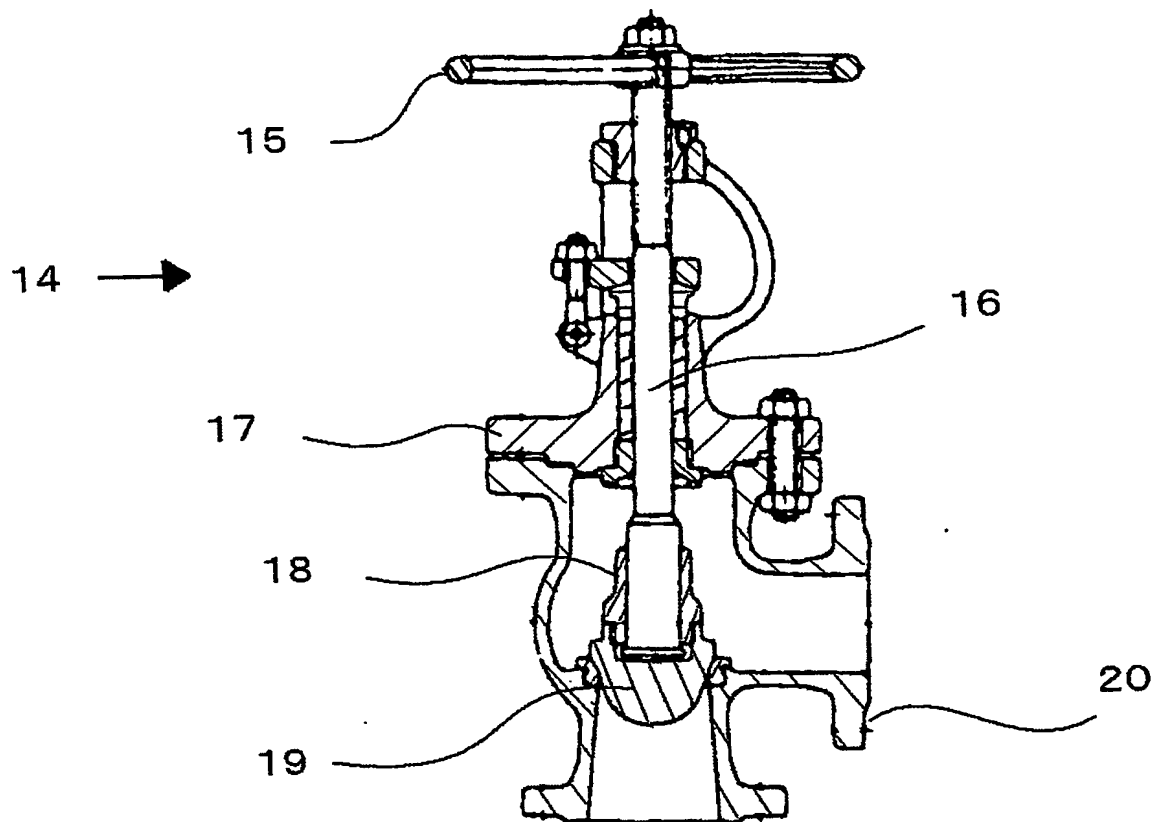
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【書類名】 要約書**【要約】**

【課題】 本発明は、滴下ノズルから滴下される滴下原液の送出量を均一にすること、これによって均一な形状及び寸法を有する重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することのできる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を提供することをその課題とする。

【解決手段】 アンモニア水溶液を貯留した滴下槽と、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を前記アンモニア水溶液中に滴下する複数の滴下ノズルと、前記複数の滴下ノズルを同時に振動させる 1 基の加振器とを備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

【選択図】 図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2003-356300
受付番号	50301719234
書類名	特許願
担当官	第一担当上席 0090
作成日	平成15年10月17日

<認定情報・付加情報>

【提出日】

平成15年10月16日

特願 2003-356300

出願人履歴情報

識別番号

[000165697]

1. 変更年月日
[変更理由]
住所
氏名

2001年 8月20日
住所変更
東京都港区三田三丁目14番10号
原子燃料工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.